УДК 621.039.51,5 41.28

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ МАТЕРИАЛОВ, ПОЛУЧЕННЫХ В РЕЖИМЕ ТЕХНОЛОГИЧЕСКОГО ГОРЕНИЯ, В ТЕХНИКЕ РАДИАЦИОННОЙ ЗАЩИТЫ: ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ЗАЩИТНЫХ СВОЙСТВ

В.И. Бойко, Д.Г. Демянюк, О.Ю. Долматов, Д.С. Исаченко, И.В. Шаманин

Томский политехнический университет
E-mail: demyanuk@phtd.tpu.ru

Экспериментально исследованы защитные свойства материалов на основе борида вольфрама, карбида бора и их послойных комбинаций при воздействии на них потоков быстрых нейтронов и γ-квантов. Указаны основные звенья технологического процесса получения многослойных защитных материалов; определены сочетания последовательности расположения и толщин слоев, выполненных из различных материалов, которые обеспечивают преимущества многослойной защиты по массогабаритным показателям.

Состояние проблемы

К основным требованиям, предъявляемым к материалам радиационной защиты, относятся оптимальные массогабаритные показатели и способность ослаблять воздействие сочетанных потоков ионизирующих излучений. Например, поток нейтронов и сопутствующий поток γ-квантов. Ослабление негативных эффектов, вызванных стационарными и импульсными, рассеянными и коллимированными потоками радиации обеспечивается за счет уменьшения интегральных потоков за защитой или за счет смещения максимума спектра излучения. Кроме того, материал защиты в ряде случаев должен быть устойчивым к значительным термоударным нагрузкам, возникающим в его объеме при термализации частиц поля излучения.

Опыт экспериментальных и расчетных исследований [1–5] показал возможность получения методом самораспространяющегося высокотемпературного синтеза (СВС) материалов, для которых необходимое сочетание ядерно-физических, электрофизических и реологических свойств (в том числе структуры поверхности) достигается при подготовке и проведении процесса синтеза.

Таким образом, была сформулирована задача – провести расчетное и экспериментальное исследование свойств СВС-материалов, в том числе – многослойных, обеспечивающих защиту от потоков ионизирующих излучений. Наиболее представленными в ядерной технике являются потоки быстрых нейтронов и γ-квантов, а к основным защитным материалам в этих случаях можно отнести борсодержащие и такие, в составе которых большое содержание элементов с высоким зарядом ядер атомов.

СВС-материалы в защите от потоков быстрых нейтронов

Экспериментальное изучение защитных от потоков нейтронов свойств керамических борсодержащих материалов, полученных методом СВС, проводилось на установке, схема которой приведена на рис. 1.

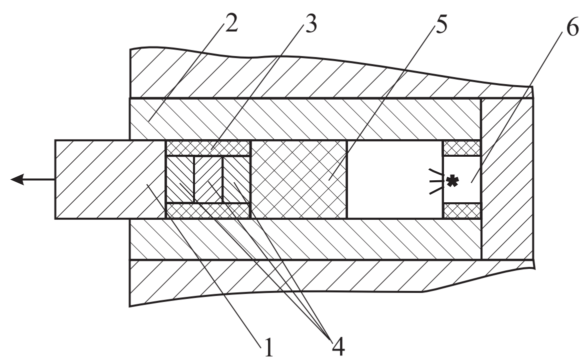


Рис. 1. *Радиометрический канал графитовой призмы: 1) торцевой детектор быстрых нейтронов; 2) блок графитовой призмы; 3) наборная графитовая втулка; 4) наборный защитный экран из образцов керамического материала; 5) сменный защитный экран из графита; 6) Pu–Be источник быстрых нейтронов*

Графитовая призма была набрана из 18 стандартных блоков графита размером 200×200×600 мм, имеющих сквозные отверстия диаметром 65 мм. В отверстиях всех блоков за исключением того, в котором размещались источник, защита и детектор,

находились цилиндрические графитовые стержни во втулках той же длины.

Сигналы с детектора нейтронного излучения подавались на анализатор VA-V-100, соединенный со счетчиком импульсов VA-G-120.

Образцы защитного композиционного материала на базе борида вольфрама и карбида бора представляли собой цилиндрические таблетки диаметром 30 и высотой 12...15 мм.

Плотность материалов, определяемая значением давления предварительного прессования исходной шихты реагентов, для всех образцов составляла 5,0...5,2 г/см^3 (W–B) и 1,2...1,32 (B–C). Состав материалов приведен в табл. 1.

Таблица 1. *Элементный состав защитных материалов*

Элемент (изотоп)	Ядерная концентрация, 10^{21}, см$^{-3}$	Массовое содержание, вес. %
W–B		
W	17,8	94,3
B^{10}	3,52	1,14
B^{11}	14,1	4,56
B–C		
C	14,2	21,7
B^{10}	11,4	15,66
B^{11}	45,6	62,64

Экран, набранный из образцов, находился в графитовой втулке, представляющей собой полый цилиндр с внешним диаметром 65 мм и внутренним – 30 мм. Сменные секции защитных графитовых экранов, диаметром 30 мм имели различную длину. Использовался стандартный Pu–Be источник быстрых нейтронов мощностью 10^7 нейтрон/с в телесный угол 4π. Эффективность детектора составляла 4 % по быстрым нейтронам. Расстояние между регистрирующим торцом детектора и источником быстрых нейтронов составляло 400 мм и в ходе эксперимента не изменялось.

Радиометрические эксперименты проводились с использованием стандартного поверенного оборудования (Лицензия на эксплуатацию и обслуживание радиометрических комплексов № СО-03-205-0909 от 16.08.04, выдана Федеральной службой по атомному надзору, действительна по 16.08.09). Время экспозиции во всех случаях составляло 60 с; для каждого варианта проводилась серия, состоящая из 100 измерений. Фоновая скорость счета составляла 889±56 имп/мин, скорость счета без защитных экранов – 55248±948 имп/мин.

Эксперименты проводились при вариации толщин защитных экранов, изготовленных из борсодержащих материалов B_4C и WB. Защитные от потоков быстрых нейтронов свойства синтезированных материалов исследовались в сравнении с аналогичными свойствами традиционного материала ядерной техники – графита.

В экспериментах, рис. 2, определялась зависимость коэффициента ослабления потоков быстрых нейтронов от геометрической и массовой толщин исследуемых борсодержащих материалов и графита. Аппроксимация проведена методом наименьших квадратов (точность не хуже 7 %). Кратность ослабления, показывающая – во сколько раз уменьшается поток частиц за экраном, является величиной, обратной коэффициенту ослабления.

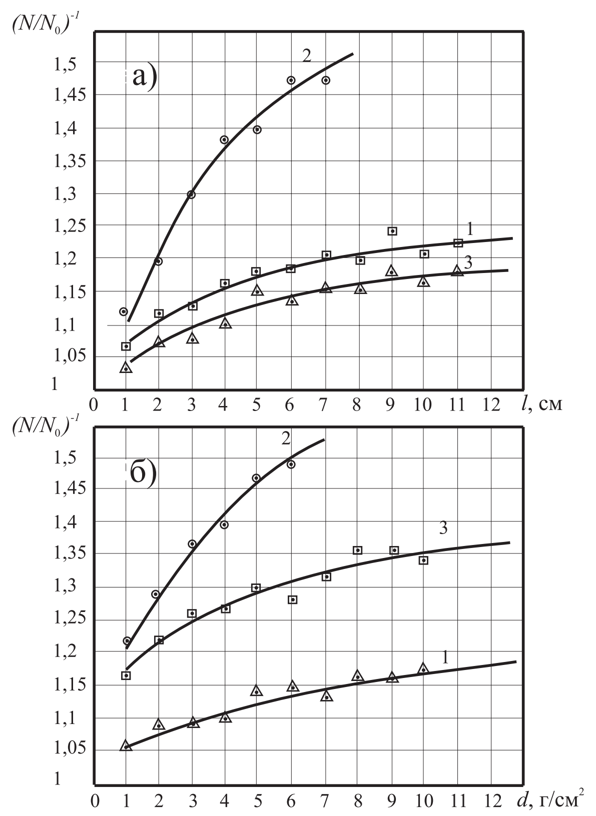


Рис. 2. *Влияние габаритных и массово-габаритных показателей на кратность ослабления: N_0 – скорость счета в отсутствии защитного экрана; N – за защитным экраном; 1) графит; 2) карбид бора; 3) борид вольфрама*

Эксперименты показали, что использование борсодержащей СВС-керамики при защите от потоков быстрых нейтронов дает выигрыш по массогабаритным показателям. Это иллюстрируется зависимостями, приведенными на рис. 2, *б*. Так, например, кратность ослабления нейтронов, равную 1,25, обеспечивает графитовый экран массовой толщиной, значительно большей 10 г/см^2; керамический WB – 3; керамический B_4C – 1,5 г/см^2.

Зависимость коэффициента ослабления от толщины материала, представленная на рис. 2, *а*, показывает, что по габаритным показателям наилучшим вариантом при использовании в качестве защиты от быстрых нейтронов является B_4C, затем C и, наконец, WB. Так, например, кратность ослабления равную 1,15 обеспечивает слой B_4C толщиной 1,5 см; 3,8 см – C; 6,7 см – WB.

Оптимальным по массогабаритным показателям материалом при защите от быстрых нейтронов является B_4C, затем WB и, наконец, C.

При взаимодействии потока быстрых нейтронов с материалом защиты нейтроны в нем замедля-

ются. Коэффициент замедления высок для материалов, у которых сечение неупругого рассеяния высокоэнергетичных нейтронов достаточно велико (W и U – 1,72 и 1,79 барн, соответственно), и на материалах с высоким сечением упругого рассеяния (C и B – 2,82 и 2,47...2,69 барн, соответственно) [6]. Как показали эксперименты (рис. 2), для защиты от быстрых нейтронов выигрышной является многослойная компоновка.

В этой связи была поставлена задача исследования защитных свойств двухслойного материала, представляющего собой последовательные слои карбида бора и борида вольфрама.

Основные звенья технологического процесса получения многослойных композиционных материалов на основе борида вольфрама и карбида бора состоят в следующем:

- подготовка исходной шихты из расчета на протекание реакций с образованием WB и B_4C для каждой композиции отдельно;
- смешивание исходных реагентов в шаровой мельнице в течение 6 ч с последующей сушкой при давлении 0,1 Па в течение 4...6 ч для каждой композиции отдельно;
- предварительное послойное прессование смесей реагентов при давлении 1,47...1,96 МПа, толщина слоев может варьироваться;
- предварительный подогрев образцов при температуре 500...550 K;
- достижение температуры инициации СВС-процесса в пределах 1000...1100 K;
- инициация СВС происходит в слое W–B, затем процесс инициируется в B–C от W–B, т.к. температура инициации синтеза для B–C выше, чем для W–B (1100...1150..и 950...1000 K, соответственно);
- отжиг полученных многослойных образцов при температуре 800...850 K.

В экспериментах определялся интегральный поток нейтронов за защитой в зависимости от её толщины, рис. 3. Сравнение проводилось с графитом. Аппроксимация результатов проводилась методом наименьших квадратов (точность не хуже 7 %).

Эксперименты показали, что наиболее эффективна защита при фиксированной толщине слоя WB. Так, для того, чтобы поток надтепловых нейтронов уменьшился в 1,15 раза необходимо: 6,5 см многослойной защиты, из которых 2 см – WB и 4,5 см – B_4C (кривая 4); 16,4 см многослойной защиты из которых 2,4 см – B_4C и 14 см – WB (кривая 2); 20,9 см – C (кривая 1); 8,5 см – B_4C (кривая 3). Для «отсекания» тепловых нейтронов использовался кадмиевый фильтр.

Основную роль при защите от потоков быстрых нейтронов играет карбид бора, что объясняется высокой замедляющей способностью легких ядер (кривая 3, 4). Уменьшение значений интегральных нейтронных потоков за защитным экраном из многослойного материала при введении тонкого сантиметрового слоя из борида вольфрама (кривая 4) может быть объяснено процессами неупругого рассеяния нейтронов на тяжелых ядрах вольфрама. Можно предположить, что увеличение толщины WB-слоя должно увеличивать эффективность защиты.

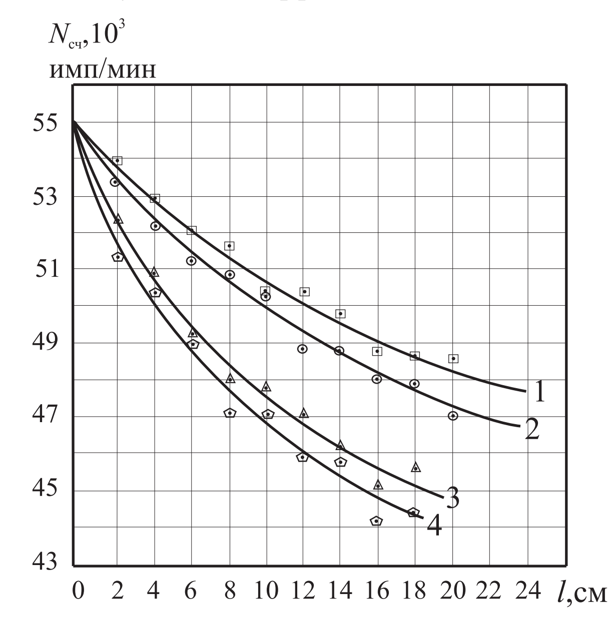


Рис. 3. *Ослабление интегрального по энергиям и углам потока нейтронов от толщины защитного экрана l: $N_{сч}$ – скорость счета; 1) графит; 2) многослойный материал: толщина слоя карбида бора постоянна (1 см), толщина слоя борида вольфрама изменяется; 3) карбид бора; 4) многослойный материал: толщина слоя борида вольфрама постоянна (1 см), толщина слоя карбида бора изменяется*

Необходимо отметить, что метод направленного СВС [7] позволяет варьировать массогабаритные показатели синтезированных защитных экранов в достаточно широких пределах. Так, установлена возможность их получения из шихты исходных реагентов, плотность которой можно увеличивать в несколько раз. При той же массовой толщине материалов их геометрическая толщина уменьшается практически прямо пропорционально.

СВС-материалы в защите от γ-излучения

Эксперименты по изучению ослабления γ-излучения при прохождении через исследуемые материалы проводились на установке, схема которой представлена на рис. 4.

При защите от потоков γ-квантов, которые в ядерных реакторах являются сопутствующими потокам нейтронов, целесообразно использовать элементы с высоким атомным номером. Поэтому исследование защитных свойств проводилось для борида вольфрама и многослойного материала B_4C–WB при вариации толщины WB-слоя. Изучение защитных свойств проводилось в сравнении со свинцом. Образцы исследуемых материалов представляли собой цилиндрические таблетки диаметром 30 мм и высотой 12...15 мм. Расстояние между регистрирующим

торцом детектора и источником γ-излучения составляло 50 мм и в ходе эксперимента не изменялось. Время экспозиции составляло 100 с.

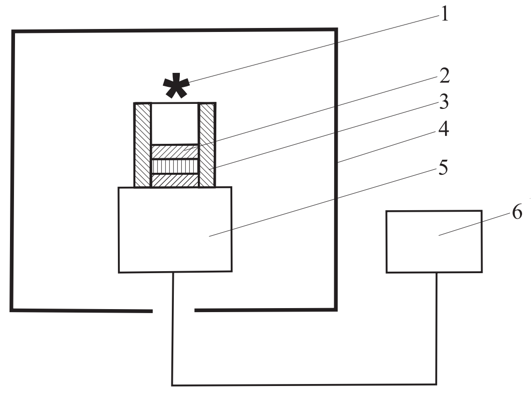


Рис. 4. *Экспериментальная установка для определения защитных от γ-излучения свойств материалов: 1) источник γ-излучения; 2) защитный экран; 3) дистанцирующая втулка; 4) свинцовый домик; 5) блок детектирования типа КДБС3-IeM; 6) амплитудный анализатор типа АМА-03Ф*

Использовался стандартный источник γ-излучения на основе Co^{60}, имеющий следующие характеристики:

- период полураспада – 5,27 года;
- энергия γ-излучения – первая линия 1173,2 кэВ, вторая линия 1332,5 кэВ;
- выход первой γ-линии 99,8 %, выход второй γ-линии 100 %;
- активность – 99300 Бк.

На рис. 5 приведен аппаратурный спектр Co^{60}.

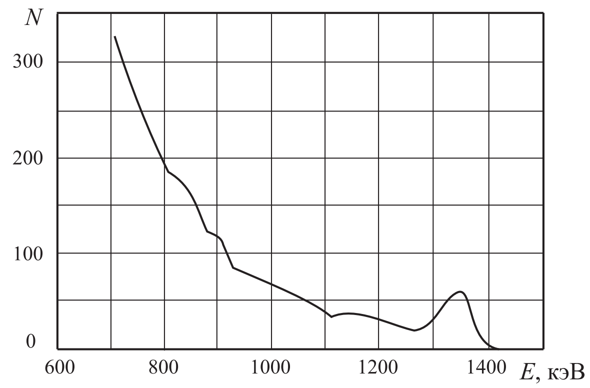


Рис. 5. *Аппаратурный γ-спектр нуклида ^{60}Co: N, E – количество и энергия зарегистрированных γ-квантов*

Кроме γ-квантов с энергиями, характерными для ^{60}Co, в спектре присутствует достаточно большое количество фотонов с более низкой энергией. Это объясняется комптоновским рассеянием части γ-квантов в материале детектора.

Эксперименты показали, что использование СВС-металлокерамики в случае защиты от γ-излучения по сравнению с традиционными односоставными защитными материалами при равных значениях массовой толщины позволяет снизить поток γ-квантов.

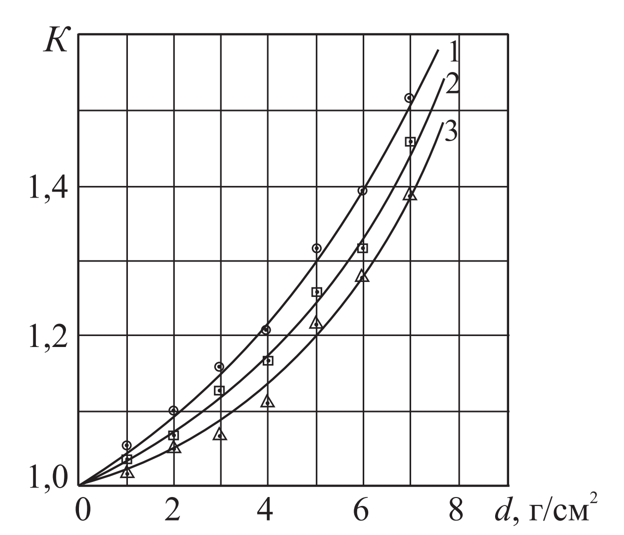


Рис. 6. *Зависимость кратности ослабления от массовой толщины защитного экрана для материалов на основе: 1) многослойного WB–B_4C; 2) WB; 3) Pb*

На рис. 6 приведены зависимости кратности ослабления от массовой толщины защитного экрана. Видно, что одну и ту же кратность ослабления обеспечивают защитные материалы различной массовой толщины. Например, кратность ослабления 1,4 обеспечивается многослойным материалом WB–B_4C массовой толщиной около 6 г/см²; WB – 6,6 г/см²; Pb – 7,15 г/см².

Кроме того, использование СВС-материалов в качестве защитных от γ-излучения позволяет получать за защитными экранами спектры излучения, характеризующиеся высокой долей низкоэнергетического γ-излучения по сравнению с традиционными материалами. Другими словами, эффективно ослабляя потоки γ-квантов, СВС-материалы значительно «смягчают» спектр за защитой за счет более интенсивного рассеяния не поглотившихся квантов на свободных поверхностях пор в объеме материала. Взаимодействие γ-квантов со свободной поверхностью подробно рассмотрено в монографии [8]. Это иллюстрируется данными табл. 2, в которой приведены результаты экспериментов по прохождению γ-квантов источника ^{60}Co через различные материалы (время экспозиции 100 с).

Таблица 2. *Результаты экспериментов*

Материал	Массовая толщина, г/см²	Количество зарегистрированных фотонов, 10^8		Доля низкоэнергетичных фотонов в спектре
		Полное	С энергией 0...400 кэВ	
WB	3,4 6,8 10,3 13,7	10,5 9,59 8,89 7,72	9,54 8,46 7,40 5,60	0,91 0,88 0,83 0,73
Pb	3,4 5,7 7,6 9,6	14,1 7,2 3,8 1,99	5,08 3,67 2,47 1,13	0,36 0,51 0,65 0,57

Заключение

В режиме технологического горения синтезированы композиционные материалы, в том числе – многослойные, предназначенные для изготовления элементов радиационной защиты. Анализ результатов приборных экспериментов по изучению защитных от ионизирующих излучений свойств композиционных материалов, полученных в режиме технологического горения, позволяет сформулировать следующие выводы:

- материалы, полученные методом СВС, обеспечивают уникальное сочетание ядерно-физических, реологических свойств (микрорельеф поверхности, пористость, форма и размер пор) и массогабаритных параметров, которое позволяет их использовать для эффективной защиты от потоков быстрых нейтронов и γ-квантов;
- метод СВС позволяет получать многослойные композиционные материалы, обеспечивающие преимущества по массогабаритным показателям при защите от потоков быстрых нейтронов;
- эффективно ослабляя потоки γ-квантов, СВС-материалы значительно «смягчают» спектр за защитой за счет более интенсивного рассеяния не поглотившихся квантов в объеме материала.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Новиков Н.П., Боровинская Н.П., Мержанов А.Г. Термодинамический анализ реакций самораспространяющегося высокотемпературного синтеза // В сб.: Процессы горения в химической технологии и металлургии / Под ред. А.Г. Мержанова. – Черноголовка, 1975. – С. 174–188.
2. Бойко В.И., Долматов О.Ю., Шаманин И.В., Нужин О.А. Направленный самораспространяющийся высокотемпературный синтез ряда взрывоэмиссионных металлокерамических материалов // Физика горения и взрыва. – 1996. – Т. 32. – № 1. – С. 58–65.
3. Демянюк Д.Г., Долматов О.Ю. Направленный синтез и использование нетрадиционных катодных материалов // Известия вузов. Физика. – 2000. – Т. 43. – № 5. – С. 24–29.
4. Bojko V.I., Dolmatov O.Yu., Shamanin I.V., Yushitsin K.V. High-current emitters synthesized by technological combustion // Instruments and Experimental Techniques. – 1993. – V. 36. – № 5. – P. 790–792.
5. Bojko V.I., Dolmatov O.Yu., Shamanin I.V., Kadlubovich B.E. A composite explosive emission cathode made from a metal ceramic with lanthanum and titanium borides // Instruments and Experimental Techniques. – 1995. – V. 38. – № 2. – P. 272–274.
6. Бартоломей Г.Г., Бать Г.А., Байков В.Д., Алхутов М.С. Основы теории и методы расчета ядерных энергетических реакторов. – М.: Энергоатомиздат, 1989. – 512 с.
7. Demyanyuk D.G., Dolmatov O.Yu., Richkevitch M.P. Application of Self-propagating High-temperature Synthesis to High-current Electronics // International Journal of Self-propagating High-temperature Synthesis. – 2004. – V. 13. – № 2. – P. 183–192.
8. Аккерман А.Ф., Грудский М.Я., Смирнов В.В Вторичное электронное излучение из твердых тел под действием г-квантов. – М.: Энергоатомиздат, 1986. – 186 с.

УДК 621.039.532.21